

09.04.01

日 本 国 特 許 庁  
PATENT OFFICE  
JAPANESE GOVERNMENT

REC'D 20 APR 2001

WIPO PCT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日

Date of Application:

2000年 2月16日

Eku

出 願 番 号

Application Number:

特願2000-037490

出 願 人

Applicant(s):

大日本印刷株式会社

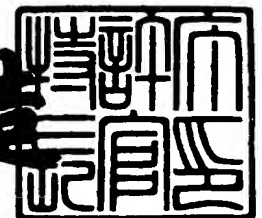
09/936512

PRIORITY  
DOCUMENT  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

2001年 3月23日

特許庁長官  
Commissioner,  
Patent Office

及 川 耕 造



出証番号 出証特2001-3023115

【書類名】 特許願

【整理番号】 P000263

【提出日】 平成12年 2月16日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 H01M 2/00

【発明者】

    【住所又は居所】 東京都新宿区市ヶ谷加賀町一丁目1番1号 大日本印刷株式会社内

    【氏名】 山下 力也

【発明者】

    【住所又は居所】 東京都新宿区市ヶ谷加賀町一丁目1番1号 大日本印刷株式会社内

    【氏名】 奥下 正隆

【発明者】

    【住所又は居所】 東京都新宿区市ヶ谷加賀町一丁目1番1号 大日本印刷株式会社内

    【氏名】 山田 一樹

【発明者】

    【住所又は居所】 東京都新宿区市ヶ谷加賀町一丁目1番1号 大日本印刷株式会社内

    【氏名】 宮間 洋

【特許出願人】

    【識別番号】 000002897

    【氏名又は名称】 大日本印刷株式会社

    【代表者】 北島 義俊

【代理人】

    【識別番号】 100111659

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 金山 聡

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 013055

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9808512

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 ポリマー電池包装用シールヘッドおよびそれを用いたシール方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 柔軟な積層体からなる外装体にポリマー電池本体を収納し、外装体のタブを含む端縁部をヒートシールにより密封する際に用いるシールヘッドであって、少なくともシールヘッドの片面におけるシール面の前記ヒートシールの際にタブ部に当接する領域を凹部としたことを特徴とするポリマー電池包装用シールヘッド。

【請求項 2】 ポリマー電池用包装材料として、少なくとも基材層、接着層 1、化成処理層 1、バリア層、化成処理層 2、最内層からなり、ポリオレフィンフィルムからなる最内層がバリア層に形成された化成処理層 2 の面とドライラミネートされた積層体を用いることを特徴とする請求項 1 に記載のポリマー電池包装用シールヘッド。

【請求項 3】 基材層、接着層、化成処理層 1、バリア層、化成処理層 2、酸変性ポリオレフィン層、最内層からなり、酸変性ポリオレフィンからなる前記酸変性ポリオレフィン層とポリプロピレンからなる最内層とが酸変性ポリオレフィンの軟化点以上の温度で熱ラミネートされて形成されたこと積層体を用いることを特徴とする請求項 1 に記載のポリマー電池包装用シールヘッド。

【請求項 4】 基材層、接着層、化成処理層 1、バリア層、化成処理層 2、押出樹脂層、最内層からなる積層体であり、押出樹脂層が酸変性ポリオレフィン樹脂であり、最内層がポリオレフィンフィルムからなり、化成処理層 2 の面に、押出樹脂と最内層によるサンドイッチラミネート後、酸変性ポリオレフィンの軟化点以上の温度に加熱して得られた積層体を用いることを特徴とする請求項 1 に記載のポリマー電池包装用シールヘッド。

【請求項 5】 基材層、接着層、化成処理層 1、バリア層、化成処理層 2、押出樹脂層、最内層からなる積層体であり、押出樹脂層が酸変性ポリオレフィン樹脂であり、最内層がポリオレフィンからなり、化成処理層 2 の面に、押出樹脂と最内層とを共押出し後、酸変性ポリオレフィンの軟化点以上の温度に加熱し

て得られた積層体を用いることを特徴とする請求項 1 に記載のポリマー電池包装用シールヘッド。

【請求項 6】 一辺が未シールのパウチタイプに形成された外装体の  
前記未

シール辺からポリマー電池本体のタブ部が未シール辺に位置するように  
収納し、

該未シール辺を、シールヘッドのシール面におけるヒートシールの際に  
タブ部

に当接する領域を凹部としたシールヘッドを用いてヒートシールするこ  
とを特

徴とするシール方法。

【請求項 7】 エンボスタイプである外装体にポリマー電池本体を収  
納し、

ポリマー電池本体のタブ部をヒートシールするシールヘッドのシール面  
におけ

るヒートシールの際にタブ部に当接する領域を凹部としたシールヘッド  
を用い

てヒートシールすることを特徴とするシール方法。

#### 【発明の詳細な説明】

##### 【0001】

#### 【発明の属する技術分野】

本発明は、防湿性、耐内容物性を有する固体有機電解質（高分子ポリマー電解質）を持つポリマー電池用シールヘッドに関する。

##### 【0002】

#### 【従来の技術】

ポリマー電池とは、リチウム 2 次電池ともいわれ、高分子ポリマー電解質を持ち、リチウムイオンの移動で電流を発生する電池であって、正極・負極活物質が高分子ポリマーからなるものを含むものである。

リチウム 2 次電池の構成は、正極集電材（アルミニウム、ニッケル）／正

極活性物質層（金属酸化物、カーボンブラック、金属硫化物、電解液、ポリアクリロニトリル等の高分子正極材料）／電解質層（プロピレンカーボネート、エチレンカーボネート、炭酸ジメチル、エチレンメチルカーボネート等のカーボネート系電解液、リチウム塩からなる無機固体電解質、ゲル電解質）／負極活性物質（リチウム金属、合金、カーボン、電解液、ポリアクリロニトリルなどの高分子負極材料）／負極集電材（銅、ニッケル、ステンレス）及びそれらを包装する外装体からなる。

ポリマー電池の用途としては、パソコン、携帯端末装置（携帯電話、PDA等）、ビデオカメラ、電気自動車、エネルギー貯蔵用蓄電池、ロボット、衛星等に用いられる。

前記ポリマー電池の外装体としては、金属をプレス加工して円筒状または直方体状に容器化した金属製缶、あるいは、基材層、アルミニウム、シーラント層から構成される積層体を袋状にしたものが用いられていた。

### 【 0 0 0 3 】

#### 【発明が解決しようとする課題】

しかるに、ポリマー電池の外装体として、次のような問題があった。金属製缶においては、容器外壁がリジッドであるため、電池自体の形状が決められてしまう。そのため、ハード側を電池にあわせる設計をするため、該電池を用いるハードの寸法が電池により決定されてしまい形状の自由度が少なくなる。

そこで、積層体を袋状にしてポリマー電池本体を収納するパウチタイプまたは、前記積層体をプレス成形して凹部を形成し、該凹部にポリマー電池本体を収納するエンボスタイプが開発されている。エンボスタイプは、パウチタイプと比較して、よりコンパクトな包装体を得られる。いずれのタイプの外装体であっても、ポリマー電池としての防湿性あるいは耐突き刺し性等の強度、絶縁性等は、ポリマー電池の外装体として欠かせないものである。

そして、ポリマー電池を外装体に収納してその周縁をヒートシールして、密封包装をしているが、ポリマー電池本体には、電池本体内部に起電された電流を外部に取り出す電極（タブ）が、板状に取付けられている。前記密封包装の際に、該電極（タブ）を挟持した状態でヒートシールすることになる。しかし、タ

ブは、50～200 $\mu$ mの厚さを有するため、タブを挟持したシール部は、その断面を観察すると、図10(a)および図10(b)に示すように、タブ4の両端の断面部分において、包装材料のヒートシール層を形成する樹脂がタブの厚さにより形成される段差を埋め切れず、シール抜け9dを起こすことがあった。原因としては、タブの厚さ方向、すなわち、端面部分にシールを安定化するために必要な圧力と温度のうち、温度しか作用しないためである。

本発明の目的は、ポリマー電池包装におけるタブ部のヒートシールによる密封を確実にするシールヘッドおよびシール方法を提供することである。

#### 【0004】

##### 【課題を解決するための手段】

本発明は、柔軟な積層体からなる外装体にポリマー電池本体を収納し、外装体のタブを含む端縁部をヒートシールにより密封する際に用いるシールヘッドであって、少なくともシールヘッドの片面におけるシール面の前記ヒートシールの際にタブ部に当接する領域を凹部としたことを特徴とするポリマー電池包装用シールヘッドであって、そこに用いられるポリマー電池用包装材料としては、ポリマー電池用包装材料として、少なくとも基材層、接着層1、化成処理層1、バリア層、化成処理層2、最内層からなり、ポリオレフィンフィルムからなる最内層を、バリア層に形成された化成処理層2の面とドライラミネートされた積層体、基材層、接着層、化成処理層、バリア層、化成処理層2、酸変性ポリオレフィン層、最内層からなり、酸変性ポリオレフィンからなる前記酸変性ポリオレフィン層とポリプロピレンからなる最内層とが酸変性ポリオレフィンの軟化点以上の温度で熱ラミネートされて形成されたこと積層体、基材層、接着層、化成処理層1、バリア層、化成処理層2、押出樹脂層、最内層からなる積層体であり、押出樹脂層が酸変性ポリオレフィン樹脂であり、最内層がポリオレフィンフィルムからなり、化成処理層2の面に、押出樹脂と最内層によるサンドイッチラミネート後、酸変性ポリオレフィンの軟化点以上の温度に加熱して得られた積層体、基材層、接着層、化成処理層1、バリア層、化成処理層2、押出樹脂層、最内層からなる積層体であり、押出樹脂層が酸変性ポリオレフィン樹脂であり、最内層がポリオレフィンからなり、化成処理層2の面に、押出樹脂と最内層とを共押し後

、酸変性ポリオレフィンの軟化点以上の温度に加熱して得られた積層体であり、また、そのシール方法としては、一辺が未シールのパウチタイプに形成された外装体の前記未シール辺からポリマー電池本体のタブ部が未シール辺に位置するように収納し、該未シール辺を、シールヘッドのシール面におけるヒートシールの際にタブ部に当接する領域を凹部としたシールヘッドを用いてヒートシールする、また、エンボスタイプである外装体にポリマー電池本体を収納し、ポリマー電池本体のタブ部をヒートシールするシールヘッドのシール面におけるヒートシールの際にタブ部に当接する領域を凹部としたシールヘッドを用いてヒートシールする方法である。

# 【 0 0 0 5 】

## 【発明の実施の形態】

本発明は、ポリマー電池本体を外装体に収納して、タブ部を挟持してヒートシールにより密封シール際に、タブの厚みによるシール抜けのおそれのないシールヘッドに関するものである。すなわち、タブの端部に対し、シールの安定化に必要な圧力と温度を効果的に作用させることができるシールヘッド形状に関するもので、以下、図面等によって詳細に説明する。

図 1 は、本発明のポリマー電池包装用シールヘッドの形状を説明する、(a) 斜視図、(b) ポリマー電池のタブ部のヒートシール状態を示す概念図である。

図 2 は、本発明のポリマー電池包装用シールヘッドを用いて得られた、(a) ポリマー電池の斜視図、(b)  $X_1-X_1$  部断面図、(c)  $Y_1$  である。図 3 は、ポリマー電池のパウチタイプの外装体を説明する斜視図である。図 4 は、ポリマー電池のエンボスタイプの外装体を説明する斜視図である。図 5 は、エンボスタイプにおける成形を説明する、(a) 斜視図、(b) エンボス成形された外装体本体、(c)  $X_2-X_2$  部断面図、(d)  $Y_1$  部拡大図である。図 6 は、本発明のポリマー電池用包装材料に用いられる積層体の構成例を説明する断面図である。図 7 は、ポリマー電池用包装材料を製造するサンドイッチラミネートを説明する概念図である。図 8 は、ポリマー電池用包装材料を製造する共押出しラミネートを説明する概念図である。図 9 は、ポリマー電池用包装材料とタブとの接着



における接着性フィルムの装着方法を説明する斜視図である。

# 【0006】

ポリマー電池の包装は、ポリマー電池用包装材料が、例えばナイロン／接着層／アルミニウム／接着層／ポリエチレンの構成からなる積層体を用いて、一边を開口状態としたパウチタイプに製袋し、該開口部からポリマー電池本体のタブ部が開口部に位置するように、ポリマー電池本体を挿入し、該開口部をヒートシールにより、密封することによってなされる。従来、このヒートシールに用いるシールヘッドのシール面はフラットであった。フラットな面のシールヘッドを用いてヒートシールすると、図10(a)または図10(b)に示すように、タブ4の両端部において、ヒートシール樹脂によりタブの厚さによる段差を埋め切れず、その結果シール抜け（ピンホール）9dが発生することがあった。このシール抜け9dの発生を防ぐために、ヒートシール温度、シール圧の条件を厳密に管理する必要があった。つまり、適性作業範囲が狭く、安定生産が困難であった。

そこで、本発明者らは、前記タブを挟持する辺のヒートシールが安定してできる方法について鋭意研究の結果、図1(a)に示すように、タブ4を挟持してヒートシールするシールヘッド10の、少なくとも片面においてシール面のタブ部に当接する領域を凹部11とすることによって、本発明の課題を解決できることを見出し本発明を完成するに到った。図1(a)においては、シールヘッドの両方に相対して凹部を形成した例を示している。

実験を重ねた結果、前記凹部の深さmは、シールヘッドの両面に設ける場合には、タブにおける厚さの $1/3$ ～タブの厚さの範囲、また、凹部の巾nはタブの巾+0.2～2.0mmの範囲、さらに好ましくは0.3～1.0mmの範囲とすることが効果的であることが判明した。

因みに、一般的なポリマー電池におけるタブの厚さは、 $50 \sim 200 \mu\text{m}$ 程度であり、巾は $5 \sim 20 \text{ mm}$ 程度である。

# 【0007】

本発明のポリマー電池包装用シールヘッドを用いてポリマー電池を製品とする際、図3に示すように、外装体をパウチタイプとする場合と、図4に示すよう

に、ポリマー電池用包装材料をプレス成形してポリマー電池本体を収納するエンボス部 7 を形成することを特徴とするエンボスタイプとする場合がある。パウチタイプは、図 3 に示すように、一边を未シール状態の開口部として製袋されたパウチ 5 にポリマー電池本体 2 を収納して、前記開口部を、タブ 4 を挟持してヒートシールする方式である。図 3 におけるパウチ 5 の製袋方式は、ピロータイプであるが、特に図示はしないが、3 方シール、4 方シール等の製袋方式を用いてもよい。

#### 【0008】

また、外装体をエンボスタイプとする場合には、図 4 (d) に示すように、すくなくとも、片面にエンボス部 7 を形成した包装材料 5 p の該エンボス部にポリマー電池本体 3 を収納して、蓋材となる包装材料 5 t を被覆して周縁をヒートシールする方式である。そして、エンボスタイプには、片側のみをエンボス成形したもの (a)、蓋材相当の包装材料にもエンボス成形して 4 方をヒートシールしたもの (b)、やはり、両面成形して、折り返して 3 方シールするもの (c) 等がある。

ヒートシール法としては、最内層が熱溶融し、最内層同士がシールされれば良く、例えば、加熱流体 (水、オイル等) や、ヒーターを組み込んだ熱板法、通電を利用するインパルス法、高周波電圧を印加し、フィルム自体の発熱を利用する高周波シール法、超音波振動による超音波シール法、シール部内面をフレーム (炎) や熱風で加熱後シールする方法等がある。また、ヒートシール後、冷却を行う場合でも上記発明のシール形状を用いることもできる。

#### 【0009】

次に、本発明のポリマー電池包装用シールヘッドを用いてポリマー電池を製品とする際、外装体を形成する積層体の材質について説明する。

ポリマー電池用包装材料としては、少なくとも、基材層、バリア層、最内層からなり、本発明においては、バリア層の両面に後述する化成処理層を設けることを特徴とする。

また、最内層の形成、またはラミネート方法については、ドライラミネート、熱ラミネート、サンドイッチラミネート、共押出しラミネート方法を用いるこ

とができる。また、前記各ラミネート法によって得られた積層体を後加熱することによって、バリア層と最内層との接着強度が向上し、ポリマー電池の構成要素である電解質と水分との反応により生成するフッ化水素によるデラミネーションの発生を防ぐことができる。

#### 【0010】

ポリマー電池用包装材料はポリマー電池本体を包装する外装体を形成するものであって、その外装体の形式によって、図2に示すようなパウチタイプと、図3(a)、図3(b)または図3(c)に示すようなエンボスタイプとがある。前記パウチタイプには、三方シール、四方シール等およびピロータイプ等の袋形式があるが、図2は、ピロータイプとして例示している。

また、前記エンボスタイプとしては、図3(a)に示すように、片面に凹部を形成しても良いし、図3(b)に示すように、両面に凹部を形成してポリマー電池本体を収納して周縁の四方をヒートシールして密封しても良い。また、図3(c)に示すような折り部をはさんで両側に凹部形成して、ポリマー電池を収納して3辺をヒートシールする形式もある。

#### 【0011】

本発明におけるポリマー電池用包装材料の層構成は、図6(a)～図6(d)に示すように、少なくとも基材層21、化成処理層25、バリア層22、化成処理層25および最内層24からなる積層体であり、前記最内層24は、サンドイッチラミネート法により積層するものである。そして、前記最内層24は未延伸のポリエチレンフィルム（以下、PE）または未延伸ポリプロピレンフィルムからなるものである。エンボスタイプの外装体の場合には、ポリマー電池本体を包装する収納部となる凹部を形成するために成形性の優れた積層体であることが要求される。次に、積層体の各層を構成する材料および貼り合わせについて説明する。

#### 【0012】

本発明における前記基材層21は、延伸ポリエステルまたはナイロンフィルムからなるが、この時、ポリエステル樹脂としては、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート、ポリブチレン

ナフタレート、共重合ポリエステル、ポリカーボネート等が挙げられる。またナイロンとしては、ポリアミド樹脂、すなわち、ナイロン6、ナイロン6, 6、ナイロン6とナイロン6, 6との共重合体、ナイロン6, 10、ポリメタキシリレンアジパミド(MXD6)等が挙げられる。

### 【0013】

前記基材層21は、ポリマー電池として用いられる場合、ハードと直接接触する部位であるため、基本的に絶縁性を有する樹脂層がよい。フィルム単体でのピンホールの存在、および加工時のピンホールの発生等を考慮すると、基材層は6  $\mu$ m以上の厚さが必要であり、好ましい厚さとしては12~25  $\mu$ mである。

### 【0014】

本発明においては、基材層21は耐ピンホール性および電池の外装体とした時の絶縁性を向上させるために、積層化することも可能である。

基材層を積層体化する場合、基材層が2層以上の樹脂層を少なくとも一つを含み、各層の厚みが6  $\mu$ m以上、好ましくは、12~25  $\mu$ mである。基材層を積層化する例としては、図示はしないが次の1)~7)が挙げられる。

1) 延伸ポリエチレンテレフタレート／延伸ナイロン

2) 延伸ナイロン／延伸延伸ポリエチレンテレフタレート

また、包装材料の機械適性（包装機械、加工機械の中での搬送の安定性）、表面保護性（耐熱性、耐電解質性）、2次加工とてポリマー電池用の外装体をエンボスタイプとする際に、エンボス時の金型と基材層との摩擦抵抗を小さくする目的で、基材層を多層化、基材層表面にフッ素系樹脂層、アクリル系樹脂層、シリコン系樹脂層等を設けることが好ましい。例えば、

3) フッ素系樹脂／延伸ポリエチレンテレフタレート（フッ素系樹脂は、フィルム状物、または液状コーティング後乾燥で形成）

4) シリコン系樹脂／延伸ポリエチレンテレフタレート（シリコン系樹脂は、フィルム状物、または液状コーティング後乾燥で形成）

5) フッ素系樹脂／延伸ポリエチレンテレフタレート／延伸ナイロン

6) シリコン系樹脂／延伸ポリエチレンテレフタレート／延伸ナイロン

7) アクリル系樹脂／延伸ナイロン（アクリル系樹脂はフィルム状、または液状コーティング後乾燥で硬化）

【0015】

前記バリア層22は、外部からポリマー電池の内部に特に水蒸気が浸入することを防止するための層で、バリア層単体のピンホール、及び加工適性（パウチ化、エンボス成形性）を安定化し、かつ耐ピンホール性をもたせるために厚さ15 $\mu$ m以上のアルミニウム、ニッケルなどの金属、又は、無機化合物、例えば、酸化珪素、アルミナ等を蒸着したフィルムなども挙げられるが、バリア層として好ましくは厚さが20～80 $\mu$ mのアルミニウムとする。

ピンホールの発生をさらに改善し、ポリマー電池の外装体のタイプをエンボスタイプとする場合、エンボス成形におけるクラックなどの発生のないものとするために、本発明者らは、バリア層として用いるアルミニウムの材質が、鉄含有量が0.3～9.0重量%、好ましくは0.7～2.0重量%とすることによって、鉄を含有していないアルミニウムと比較して、アルミニウムの展延性がよく、積層体として折り曲げによるピンホールの発生が少なくなり、かつ前記エンボスタイプの外装体を成形する時に側壁の形成も容易にできることを見出した。前記鉄含有量が、0.3重量%未満の場合は、ピンホールの発生の防止、エンボス成形性の改善等の効果が認められず、前記アルミニウムの鉄含有量が9.0重量%を超える場合は、アルミニウムとしての柔軟性が阻害され、積層体として製袋性が悪くなる。

【0016】

また、冷間圧延で製造されるアルミニウムは焼きなまし（いわゆる焼鈍処理）条件でその柔軟性・腰の強さ・硬さが変化するが、本発明において用いるアルミニウムは焼きなましをしていない硬質処理品より、多少または完全に焼きなまし処理をした軟質傾向にあるアルミニウムがよい。

前記、アルミニウムの柔軟性・腰の強さ・硬さの度合い、すなわち焼きなましの条件は、加工適性（パウチ化、エンボス成形）に合わせ適宜選定すればよい。たとえば、エンボス成形時のしわやピンホールを防止するためには、成形の

程度に応じた焼きなましされた軟質アルミニウムを用いることができる。

【0017】

本発明の課題に対して、本発明者らは、鋭意研究の結果、ポリマー電池用包装材料のバリア層22であるアルミニウム表、裏面に化成処理を施すことによって、前記包装材料として満足できる積層体とすることができた。前記化成処理とは、具体的にはリン酸塩、クロム酸塩、フッ化物、トリアジンチオール化合物等の耐酸性皮膜を形成することによってエンボス成形時のアルミニウムと基材層との間のデラミネーション防止と、ポリマー電池の電解質と水分とによる反応で生成するフッ化水素により、アルミニウム表面の溶解、腐食、特にアルミニウムの表面に存在する酸化アルミが溶解、腐食することを防止し、かつ、アルミニウム表面の接着性（濡れ性）を向上させ、エンボス成形時、ヒートシール時の基材層とアルミニウムとのデラミネーション防止、電解質と水分との反応により生成するフッ化水素によるアルミニウム内面側でのデラミネーション防止効果が得られた。

各種の物質を用いて、アルミニウム面に化成処理を施し、その効果について研究した結果、前記耐酸性皮膜形成物質のなかでも、フェノール樹脂、フッ化クロム（3）化合物、リン酸の3成分から構成されたものを用いるリン酸クロメート処理が良好であった。

【0018】

前記化成処理は、ポリマー電池の外装体がパウチタイプの場合には、アルミニウムの最内層側の片面だけでよい。

ポリマー電池の外装体がエンボスタイプの場合には、アルミニウムの両面に化成処理することによって、エンボス成形の際のアルミニウムと基材層との間のデラミネーションを防止することができる。アルミニウムの両面に化成処理した積層体をパウチタイプに用いてもよい。

【0019】

ポリマー電池用包装材料の最内層の形成方法として、図6（a）に示すように基材層21／接着層26（1）／化成処理層25（1）／アルミニウム22／化成処理層25（2）（以下、中間積層体）の化成処理層25（2）の面に最

内層フィルム 24 をドライラミネート 26 (2) して積層体とすることができる。

#### 【0020】

ポリマー電池用包装材料の積層における最内層の別の形成方法として、図 6 (b) に示すように、前記中間積層体の化成処理層 25 (2) の面に酸変性ポリオレフィン層 27 を形成後、最内層 24 としてポリオレフィンフィルムを熱ラミネート法により積層してもよい。

#### 【0021】

ポリマー電池用包装材料の積層における最内層 24 の第 3 の形成方法として、図 6 (c) に示すように、前記中間積層体の化成処理層 25 (2) の面に、最内層 24 としてポリオレフィンフィルムを、酸変性ポリオレフィン樹脂を接着樹脂 23 として押出してサンドイッチラミネート法により積層してもよい。図 7 にサンドイッチラミネート装置を示す。

#### 【0022】

ポリマー電池用包装材料の積層における最内層 24 の第 4 の形成方法として、図 6 (d) に示すように、前記中間積層体の化成処理層 25 (2) の面に、接着樹脂 23 として酸変性ポリオレフィン樹脂、最内層樹脂 24 としてポリオレフィン樹脂を共押出しラミネート法により積層してもよい。図 8 に共押出しラミネート装置を示す。

#### 【0023】

前記最内層の形成方法において、熱ラミネート法、サンドイッチラミネート法および共押出しラミネート法における接着樹脂または接着フィルムの酸変性ポリオレフィンが酸変性ポリプロピレンの場合には、最内層の樹脂はポリプロピレン系樹脂とし、また、前記接着樹脂または接着フィルムの酸変性ポリオレフィンが酸変性ポリエチレンの場合には、最内層の樹脂はポリエチレン系樹脂とする。

#### 【0024】

前記化成処理面に、前記各方法により、最内層を形成した積層体としたものは、化成処理面への押出酸変性ポリオレフィン樹脂（またはフィルム）の接着

性が悪く、その対策として、本発明者らは、前記化成処理面に、酸変性ポリオレフィンのエマルジョン液をロールコート法等により塗布し、例えば、前記ポリオレフィンがポリプロピレンの場合には、乾燥後、170～200℃の温度で焼付けを行った後、酸変性ポリプロピレンを接着樹脂として、最内層となるポリプロピレンフィルムをサンドイッチラミネートすると、その接着強度はよくなるが、前記焼付けの加工速度は極めて遅く、生産性の悪いものである。

## 【0025】

そこで、本発明者らは、酸変性ポリオレフィンの塗布、焼付けが無くとも、安定した接着強度を示す積層方法について鋭意研究の結果、前記中間積層体の化成処理層（2）に各種の方法によって最内層を形成した積層体を加熱することによって、所定の接着強度を有する積層体とすることができた。

前記加熱の具体的な方法としては、熱ロール接触式、熱風式、近または遠赤外線等の方法があるが、本発明においてはいずれの加熱方法でもよく、前述のように、接着樹脂がその軟化点温度以上に加熱できればよい。

## 【0026】

また、別の方法としては、前記、最内層を形成する際に、アルミニウムの最内層側の表面温度が酸変性ポリオレフィン樹脂の軟化点に到達する条件に加熱後、サンドイッチラミネート法又は共押出し法で形成することによっても接着強度の安定した積層体とすることができた。

## 【0027】

本発明のポリマー電池用包装材料の積層体として、前記、基材層、バリア層、最内層の他に、バリア層と最内層との間に中間層を設けてもよい。中間層は、ポリマー電池用包装材料としての強度向上、バリア性の改善安定化などのために積層されることがある。

## 【0028】

本発明の積層体における前記の各層には、適宜、製膜性、積層化加工、最終製品2次加工（パウチ化、エンボス成形）適性を向上、安定化する目的のために、コロナ処理、ブラスト処理、酸化処理、オゾン処理等の表面活性化処理をしてもよい。



## 【 0 0 2 9 】

本発明のポリマー電池包装用シールヘッドにおいて用いる積層体の最内層が金属に対するヒートシール性を持たない場合には、ポリマー電池におけるタブ部のヒートシールの際には、図 9 (a)、図 9 (b)、図 9 (c) に示すように、タブと積層体の最内層との間に、金属と最内層との双方に対してヒートシール性を有する接着フィルムを介在させることにより、タブ部での密封性も確実となる。前記接着フィルムは、図 9 (d)、図 9 (e)、図 9 (f) に示すように、タブの所定の位置に巻き付けても良い。

前記接着性フィルムとしては、前記不飽和カルボングラフトポリオレフィン、金属架橋ポリエチレン、エチレンまたはプロピレンとアクリル酸、またはメタクリル酸との共重合体からなるフィルムを用いることができる。

## 【 0 0 3 0 】

本発明のポリマー電池用包装材料における基材とバリア層の化成処理面とは、ドライラミネート法によって貼り合わせることが望ましい。

前記、基材とアルミニウムのリン酸クロメート処理面とのドライラミネートに用いる接着剤としては、ポリエステル系、ポリエチレンイミン系、ポリエーテル系、シアノアクリレート系、ウレタン系、有機チタン系、ポリエーテルウレタン系、エポキシ系、ポリエステルウレタン系、イミド系、イソシアネート系、ポリオレフィン系、シリコン系の各種接着剤を用いることができる。

## 【 0 0 3 1 】

## 【実施例】

本発明のポリマー電池包装用シールヘッドとそれを用いたシール方法について、実施例によりさらに詳細に説明する。

ポリマー電池本体およびタブ

セル部のサイズ：30×45 mm、セル部の厚さ：3.0 mm

タブ：巾6.0 mm、厚み100 μm、長さ30 mm

実施例、比較例ともに、記載されている化成処理は、いずれも、処理液として、フェノール樹脂、フッ化クロム(3)化合物、リン酸からなる水溶液を、ロールコート法により塗布し、皮膜温度が180℃以上に条件において焼き付けた

。クロムの塗布量は、 $10\text{ mg}/\text{m}^2$ である。

パウチタイプの外装体の寸法は巾50mm、長さ60mm（ピロータイプ）とし、エンボスタイプの外装体は、片面エンボスタイプとし、成型型のエンボス部の形状を $30\times 50\text{ mm}$ 、深さ3.5mmとした。

実施例に用いたシールヘッドのシール面の形状としては（A）タイプと（B）タイプとを用いる。（A）タイプは、凹部11の深さmが $40\text{ }\mu\text{ m}$ 、凹部の巾nは7.5mm、シール巾wは5mmとした。（B）タイプは、凹部11の深さmが $80\text{ }\mu\text{ m}$ 、凹部の巾nは6.5mm、シール巾wは5mmとした。

比較例において用いたシールヘッドはフラットとした。

タブ部のヒートシール条件：190℃、5秒

なお、各例とも、タブのシール部には、接着フィルムとして、厚さ $20\text{ }\mu\text{ m}$ の酸変性ポリオレフィンフィルムをタブの両面に配してシールした。酸変性ポリオレフィンは、最内層がポリプロピレン系樹脂（融点  $T_{\text{m p p}}$ ）の場合には、酸変性ポリプロピレン（融点  $T_{\text{m p p}}\pm 20^\circ\text{C}$ ）とし、最内層がポリエチレン系樹脂（融点  $T_{\text{m p e}}$ ）の場合には、酸変性ポリエチレン（融点  $T_{\text{m p e}}\pm 30^\circ\text{C}$ ）とした。

#### 【0032】

##### 〔実施例1〕（パウチタイプ）

アルミニウム $20\text{ }\mu\text{ m}$ の片面に化成処理を施し、化成処理していない面に延伸ポリエステルフィルム（ $12\text{ }\mu\text{ m}$ ）をドライラミネート法により貼り合わせ、次に化成処理したアルミニウムの他の面に、軟化点 $115^\circ\text{C}$ 、融点 $123^\circ\text{C}$ 、厚さ $30\text{ }\mu\text{ m}$ の線状低密度ポリエチレンをドライラミネートで積層体を形成し、これを用いてパウチにして検体実施例1を得た。

##### 〔実施例2〕（パウチタイプ）

アルミニウム $20\text{ }\mu\text{ m}$ の片面に化成処理を施し、化成処理していない面に延伸ポリエステルフィルム（ $12\text{ }\mu\text{ m}$ ）をドライラミネート法により貼り合わせ、次に化成処理したアルミニウムの他の面に、軟化点 $120^\circ\text{C}$ 、融点 $154^\circ\text{C}$ 、厚さ $30\text{ }\mu\text{ m}$ のポリプロピレンをドライラミネートで積層体を形成し、これを用いてパウチにして検体実施例2を得た。

## 〔実施例 3〕（パウチタイプ）

アルミニウム 20  $\mu\text{m}$  の両面に化成処理を施し、化成処理した一方の面に延伸ポリエステルフィルム（12  $\mu\text{m}$ ）をドライラミネート法により貼り合わせ、次に化成処理したアルミニウムの他の面に、軟化点 90℃、融点 115℃の酸変性ポリエチレン樹脂を接着樹脂として 20  $\mu\text{m}$  の厚さに押出して、LLDPE フィルム 30  $\mu\text{m}$  をサンドイッチラミネートし、得られた積層体をアルミニウムの表面温度が 110℃以上になる様に加熱して、更に、これを用いてパウチにして検体実施例 3 を得た。

## 〔実施例 4〕（パウチタイプ）

アルミニウム 20  $\mu\text{m}$  の両面に化成処理を施し、化成処理した一方の面に延伸ポリエステルフィルム（12  $\mu\text{m}$ ）をドライラミネート法により貼り合わせ、次に化成処理したアルミニウムの他の面に、軟化点 120℃、融点 147℃の酸変性ポリプロピレン樹脂を接着樹脂として 20  $\mu\text{m}$  の厚さに押出して、ポリプロピレンフィルム 30  $\mu\text{m}$  をサンドイッチラミネートし、得られた積層体をアルミニウムの表面温度が 110℃以上になる様に加熱して、更に、これを用いてパウチにして検体実施例 4 を得た。

## 〔実施例 5〕（パウチタイプ）

アルミニウム 20  $\mu\text{m}$  の両面に化成処理を施し、化成処理した一方の面に延伸ポリエステルフィルム（16  $\mu\text{m}$ ）をドライラミネート法により貼り合わせ、次に化成処理したアルミニウムの他の面に、軟化点 123℃、融点 145℃、厚さ 30  $\mu\text{m}$  の酸変性ポリプロピレン 20  $\mu\text{m}$  と軟化点 120℃、融点 140℃、厚さ 30  $\mu\text{m}$  のポリプロピレン樹脂とを共押出しして積層体を形成し、得られた積層体を、アルミニウムの表面温度が 150℃以上になる様に加熱して、更に、これを用いてパウチにして検体実施例 5 を得た。

## 〔実施例 6〕（パウチタイプ）

アルミニウム 20  $\mu\text{m}$  の両面に化成処理を施し、化成処理した一方の面に延伸ポリエステルフィルム（16  $\mu\text{m}$ ）をドライラミネート法により貼り合わせ、次に化成処理したアルミニウムの他の面に、軟化点 90℃、融点 115℃、厚さ 30  $\mu\text{m}$  の酸変性ポリエチレン 30  $\mu\text{m}$  と、軟化点 115℃、融点 123℃

、厚さ30 $\mu\text{m}$ の線状低密度ポリエチレンとを共押出しして積層体を形成し、得られた積層体を、アルミニウムの表面温度が120℃以上になる様に加熱して、更に、これを用いてパウチにして検体実施例6を得た。

〔実施例7〕（エンボスタイプ）

アルミニウム40 $\mu\text{m}$ の両面に化成処理を施し、化成処理した一方の面に延伸ナイロン25 $\mu\text{m}$ をドライラミネート法により貼り合わせ、次に化成処理したアルミニウムの他の面に、軟化点120℃、融点147℃、厚さ30 $\mu\text{m}$ のポリプロピレンフィルムをドライラミネートして積層体を形成し、これを用いてエンボス成形して検体実施例7を得た。

〔実施例8〕（エンボスタイプ）

アルミニウム40 $\mu\text{m}$ の両面に化成処理を施し、化成処理した一方の面に延伸ナイロン25 $\mu\text{m}$ をドライラミネート法により貼り合わせ、次に化成処理したアルミニウムの他の面に、軟化点115℃、融点123℃、厚さ30 $\mu\text{m}$ の線状低密度ポリエチレンフィルムをドライラミネートして積層体を形成し、これを用いてエンボス成形して検体実施例8を得た。

〔実施例9〕（エンボスタイプ）

アルミニウム40 $\mu\text{m}$ の両面に化成処理を施し、化成処理した一方の面に延伸ナイロン25 $\mu\text{m}$ をドライラミネート法により貼り合わせ、次に化成処理したアルミニウムの他の面に、軟化点110℃、融点137℃、酸変性ポリプロピレン樹脂を3 $\text{g}/\text{m}^2$ となるように形成し、軟化点127℃、融点142℃、厚さ30 $\mu\text{m}$ のポリプロピレンを最内層として熱ラミネートで積層体を形成し、これを用いてパウチにして検体実施例9を得た。

〔実施例10〕（エンボスタイプ）

アルミニウム40 $\mu\text{m}$ の両面に化成処理を施し、化成処理した一方の面に延伸ポリエステル6 $\mu\text{m}$ と延伸ナイロン15 $\mu\text{m}$ とをドライラミネートしたラミネートフィルムとして、前記延伸ナイロン面と、化成処理層とをドライラミネート法により貼り合わせ、次に化成処理したアルミニウムの他の面に、軟化点110℃、融点137℃、酸変性ポリプロピレン樹脂を3 $\text{g}/\text{m}^2$ となるように形成し、軟化点127℃、融点142℃、厚さ30 $\mu\text{m}$ のポリプロピレンを最内層と

して熱ラミネートで積層体を形成し、これを用いてパウチにして検体実施例 9 を得た。

〔実施例 1 1〕（エンボスタイプ）

アルミニウム 4 0  $\mu$  m の両面に化成処理を施し、化成処理した一方の面に延伸ナイロン 2 5  $\mu$  m をドライラミネート法により貼り合わせ、次に化成処理したアルミニウムの他の面に、軟化点 9 0℃、融点 1 1 5℃の酸変性ポリエチレン樹脂を接着樹脂として 2 0  $\mu$  m の厚さに押出して、LLDPE フィルム 3 0  $\mu$  m をサンドイッチラミネートし、得られた積層体をアルミニウムの表面温度が 1 1 0℃以上になる様に加熱して、更に、これを用いてパウチにして検体実施例 7 を得た。

〔実施例 1 2〕（エンボスタイプ）

アルミニウム 4 0  $\mu$  m の両面に化成処理を施し、化成処理した一方の面に延伸ナイロン 2 5  $\mu$  m をドライラミネート法により貼り合わせ、次に化成処理したアルミニウムの他の面に、軟化点 1 2 0℃、融点 1 4 7℃の酸変性ポリプロピレン樹脂を接着樹脂として 2 0  $\mu$  m の厚さに押出して、ポリプロピレンフィルム 3 0  $\mu$  m をサンドイッチラミネートし、得られた積層体をアルミニウムの表面温度が 1 1 0℃以上になる様に加熱して、更に、これを用いてパウチにして検体実施例 1 2 を得た。

〔実施例 1 3〕（エンボスタイプ）

アルミニウム 5 0  $\mu$  m の両面に化成処理を施し、化成処理した一方の面にナイロン 2 5  $\mu$  m をドライラミネート法により貼り合わせ、次に化成処理したアルミニウムの他の面に、軟化点 1 2 0℃、融点 1 3 0℃、厚さ 3 0  $\mu$  m の酸変性ポリエチレン、厚さ 2 0  $\mu$  m と最内層となる高密度ポリエチレン樹脂（軟化点 1 2 5℃、融点 1 3 2℃、厚さ 3 0  $\mu$  m）とを共押出しして積層体を形成し、得られた積層体をアルミニウムの表面温度が 1 4 0℃になるように加熱して更に、これを用いてエンボス成形して検体実施例 1 3 を得た。

〔実施例 1 4〕（エンボスタイプ）

アルミニウム 5 0  $\mu$  m の両面に化成処理を施し、化成処理した一方の面にナイロン 2 5  $\mu$  m をドライラミネート法により貼り合わせ、次に化成処理したア

ルミニウムの他の面に、軟化点 $123^{\circ}\text{C}$ 、融点 $145^{\circ}\text{C}$ 、厚さ $30\mu\text{m}$ の酸変性ポリエチレン、最内層となるポリプロピレン樹脂（軟化点 $120^{\circ}\text{C}$ 、融点 $140^{\circ}\text{C}$ 、厚さ $30\mu\text{m}$ ）とを共押出しして積層体を形成し、得られた積層体をアルミニウムの表面温度が $140^{\circ}\text{C}$ になるように加熱して更に、これを用いてエンボス成形して検体実施例14を得た。

### 【0033】

〔比較例1〕～〔比較例14〕は、それぞれ対応する〔実施例1〕～〔実施例14〕と同じ積層体からなるパウチまたはエンボスタイプの外装体を用い、フラットなシール面のシールヘッドを用いてヒートシールしたものである。

### 〔比較例15〕

アルミニウム $20\mu\text{m}$ の両面に化成処理を施し、化成処理した一方の面に延伸ポリエステルフィルム（ $16\mu\text{m}$ ）をドライラミネート法により貼り合わせ、次に化成処理したアルミニウムの他の面に、軟化点 $90^{\circ}\text{C}$ 、融点 $115^{\circ}\text{C}$ の酸変性ポリエチレン樹脂を接着樹脂として $20\mu\text{m}$ の厚さに押出して、LLDPEフィルム $30\mu\text{m}$ をサンドイッチラミネートし、得られた積層体を用いてパウチにして検体実施例15を得た。

### 〔比較例16〕

アルミニウム $40\mu\text{m}$ の両面に化成処理を施し、化成処理した一方の面に延伸ナイロン $25\mu\text{m}$ をドライラミネート法により貼り合わせ、次に化成処理したアルミニウムの他の面に、軟化点 $120^{\circ}\text{C}$ 、融点 $147^{\circ}\text{C}$ 、厚さ $30\mu\text{m}$ の酸変性ポリプロピレンフィルムをドライラミネートして積層体を形成し、得られた積層体を用いてエンボス成形して検体比較例16を得た。

### 【0034】

#### <評価方法>

各サンプルの外装体の内部にシールチェック液を注入し、タブ部を下に向けて、タブ部の両端にシールチェック液が浸透する程度を観察した。

#### 1) 密封性

各検体のタブを下にして、外装体の内部にシールチェック液をいれて、24時間静置後に、タブ部シール部の端部にシール液が浸透しているか否かを観察

した。

## 2) 耐内容物性

保存条件として、各検体の外装体の内部に電解液を注入し、60℃、90%RHの恒温槽に、7日間保存した後に、前記電解液を除いた後、各検体のタブを下にして、外装体の内部にシールチェック液をいれて、24時間静置後に、タブ部シール部の端部にシール液が浸透しているか否かを観察した。

## 3) デラミネーション

また、アルミニウムと最内層または接着性樹脂層との間でのデラミネーションの有無を確認した。

【0035】

### <結果>

実施例1～実施例14は、シールヘッド(A)タイプ、シールヘッド(B)タイプのいずれも、各100検体中、すべてタブ端部段差部の密封は完全でありシールチェック液の浸透はなく、耐内容物性も問題なく、またデラミネーションも観察されなかった。しかし、比較例1～比較例14は、成形時の密封性において、いずれの構成の包装材料においても、過半数の検体において、シールチェック液がシール巾の中央部まで浸透しており、シール抜けの発生のおそれがあるシール状態であった。また、耐内容物性の確認においては、比較例1、比較例3、比較例11において、それぞれ100検体中2～3検体にシール抜けが見られた。その他の検体も、このようなシール状態の場合、シール抜けとともにポリマー電池の電解液と水分との反応により発生するフッ化水素によるタブ材の腐食に起因するデラミネーションの発生のおそれがあった。

比較例15及び比較例16は、耐内容物性において、100検体中、全数にアルミニウムと最内層との接着界面でのデラミネーションが観察された。

【0036】

### 【発明の効果】

本発明のポリマー電池包装用シールヘッドを用いて、ポリマー電池タブ部をヒートシールかすることによって、タブ両端部の段差部における密封が安定し、ポリマー電池としての外装体の密封性が向上した。また、積層体を形成後に、

後加熱することにより、該積層体の接着強度が向上し、ポリマー電池の電解質と浸入水分との反応により生成するフッ化水素によるデラミネーションを防止することができる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

本発明のポリマー電池包装用シールヘッドの形状を説明する、(a) 斜視図、(b) ポリマー電池のタブ部のヒートシール状態を示す概念図である。

【図 2】

本発明のポリマー電池包装用シールヘッドを用いて得られた、(a) ポリマー電池の斜視図、(b)  $X_1-X_1$  部断面図、(c)  $Y_1$  である。

【図 3】

ポリマー電池のパウチタイプの外装体を説明する斜視図である。

【図 4】

ポリマー電池のエンボスタイプの外装体を説明する斜視図である。

【図 5】

エンボスタイプにおける成形を説明する、(a) 斜視図、(b) エンボス成形された外装体本体、(c)  $X_2-X_2$  部断面図、(d)  $Y_1$  部拡大図である。

【図 6】

本発明のポリマー電池用包装材料に用いられる積層体の構成例を説明する断面図である。(各種の例を示す。)

【図 7】

ポリマー電池用包装材料を製造するサンドイッチラミネートを説明する概念図である。

【図 8】

ポリマー電池用包装材料を製造する共押出しラミネートを説明する概念図である。

【図 9】

ポリマー電池用包装材料とタブとの接着における接着性フィルムの装着方法を説明する斜視図である。



【図 1 0】

従来技術によりヒートシールしたタブを含むシール断面図である。

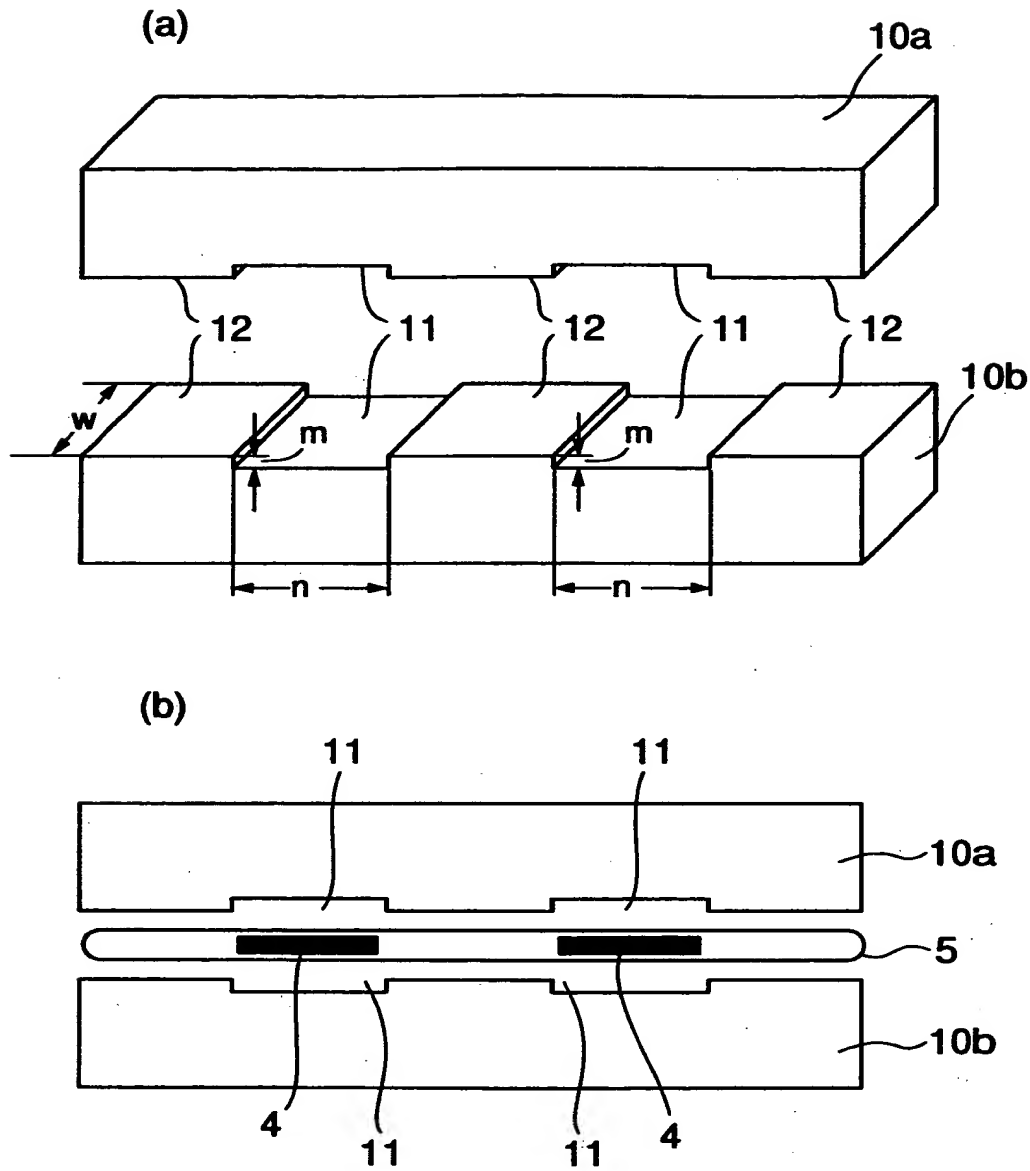
【符号の説明】

- 1 ポリマー電池
- 2 ポリマー電池本体
- 3 セル（蓄電部）
- 4 タブ（電極）
- 5 外装体
- 6 接着フィルム（タブ部）
- 7 エンボス部
- 8 側壁部
- 9 シール部
- 9 d シール抜け部
- 1 0 シールヘッド
- 1 1 凹部
- 1 2 突部
- 2 0 積層体（ポリマー電池用包装材料）
- 2 1 基材層
- 2 2 アルミニウム（バリア層）
- 2 3 接着樹脂層
- 2 4 最内層（ヒートシール層）
- 2 5 化成処理層
- 2 6 接着層
- 2 7 酸変性ポリオレフィン塗布層
- 3 0 プレス成形部
- 3 1 オス型
- 3 2 メス型
- 3 3 キャビティ
- 4 0 サンドイッチラミネート装置

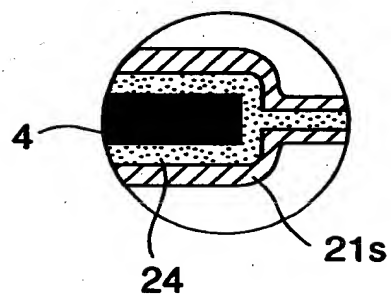
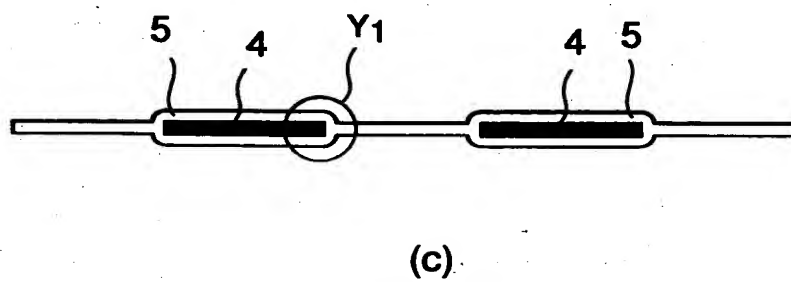
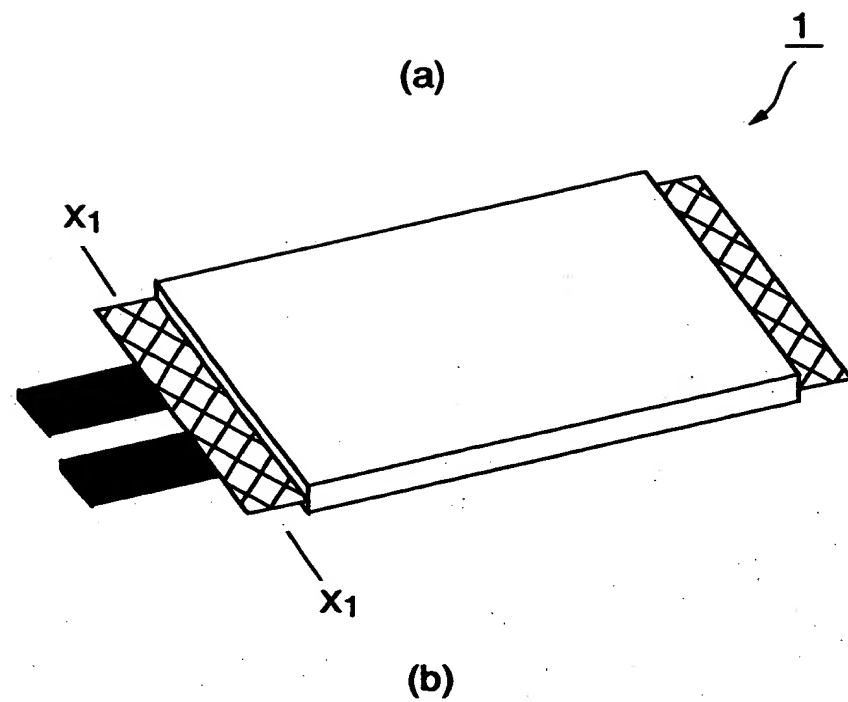
- 4 1 押出機
- 4 2 ダイ
- 4 3 溶融樹脂膜
- 4 4 チルロール
- 4 5 圧着ロール
- 4 6 被ラミネート材
- 4 7 積層体
- 5 0 共押出しラミネート装置
- 5 1 押出機
- 5 2 共押出しダイ
- 5 3 共押出溶融樹脂膜
- 5 4 チルロール
- 5 5 圧着ロール
- 5 7 積層体

【書類名】 図面

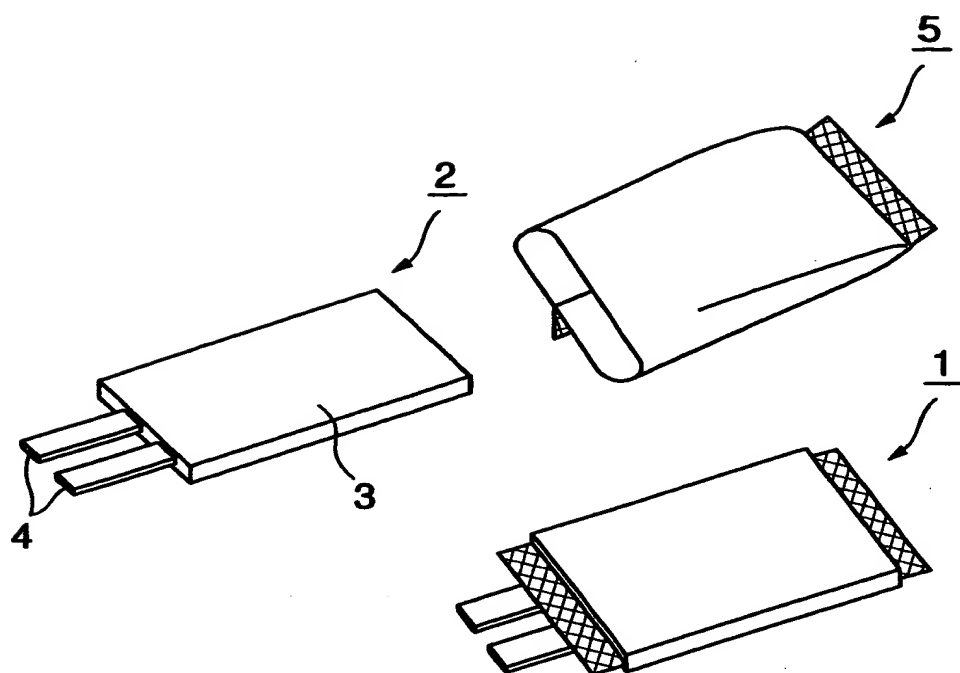
【図 1】



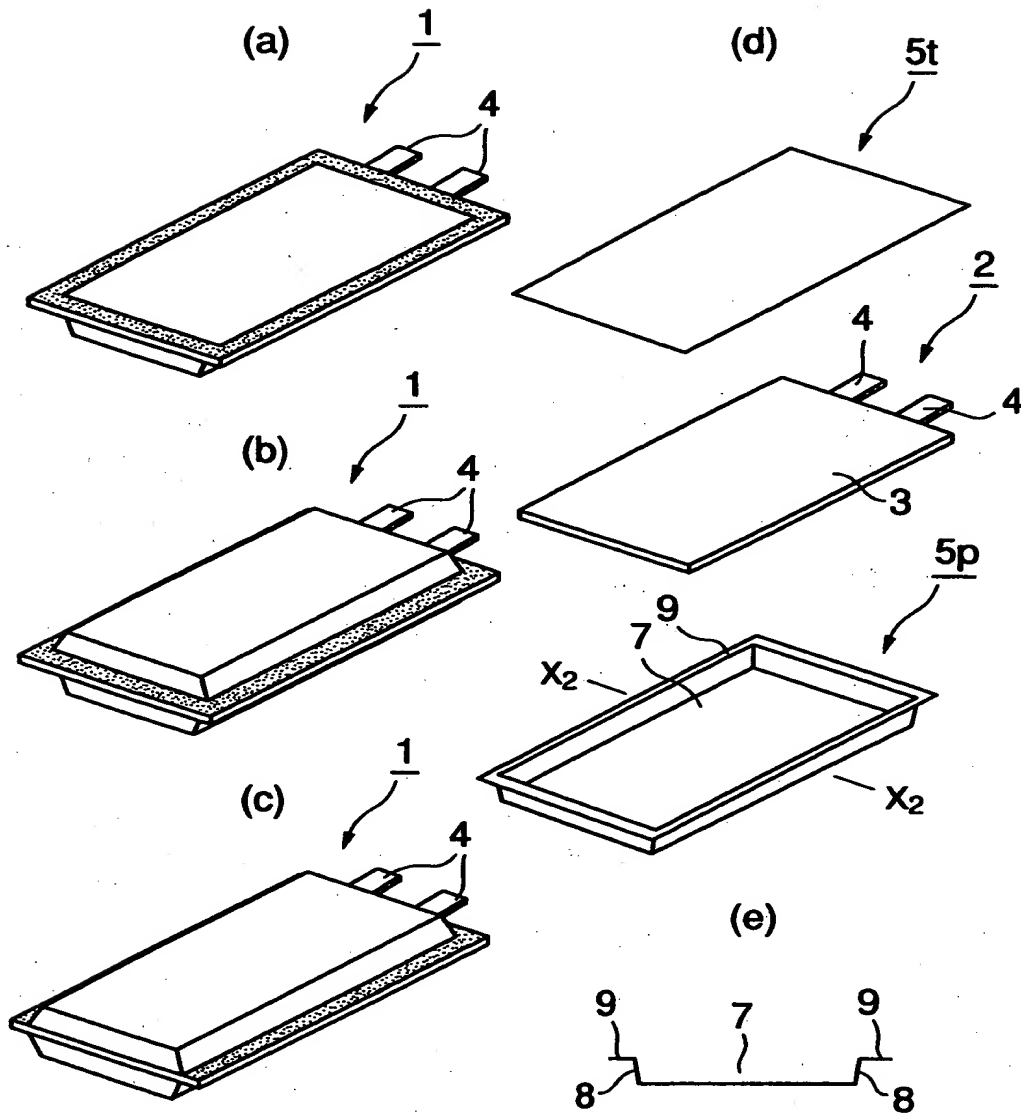
【図 2】



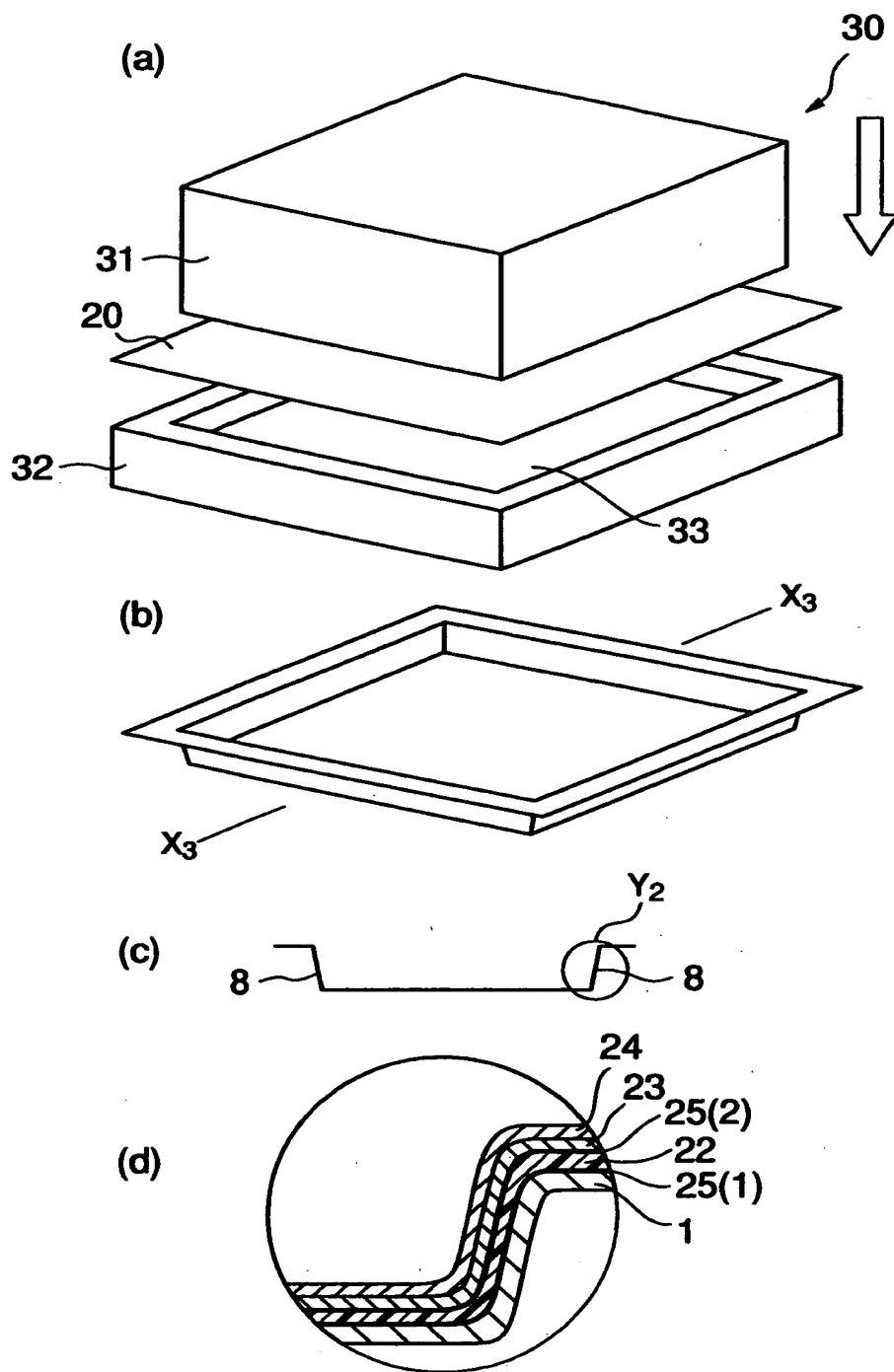
【図3】



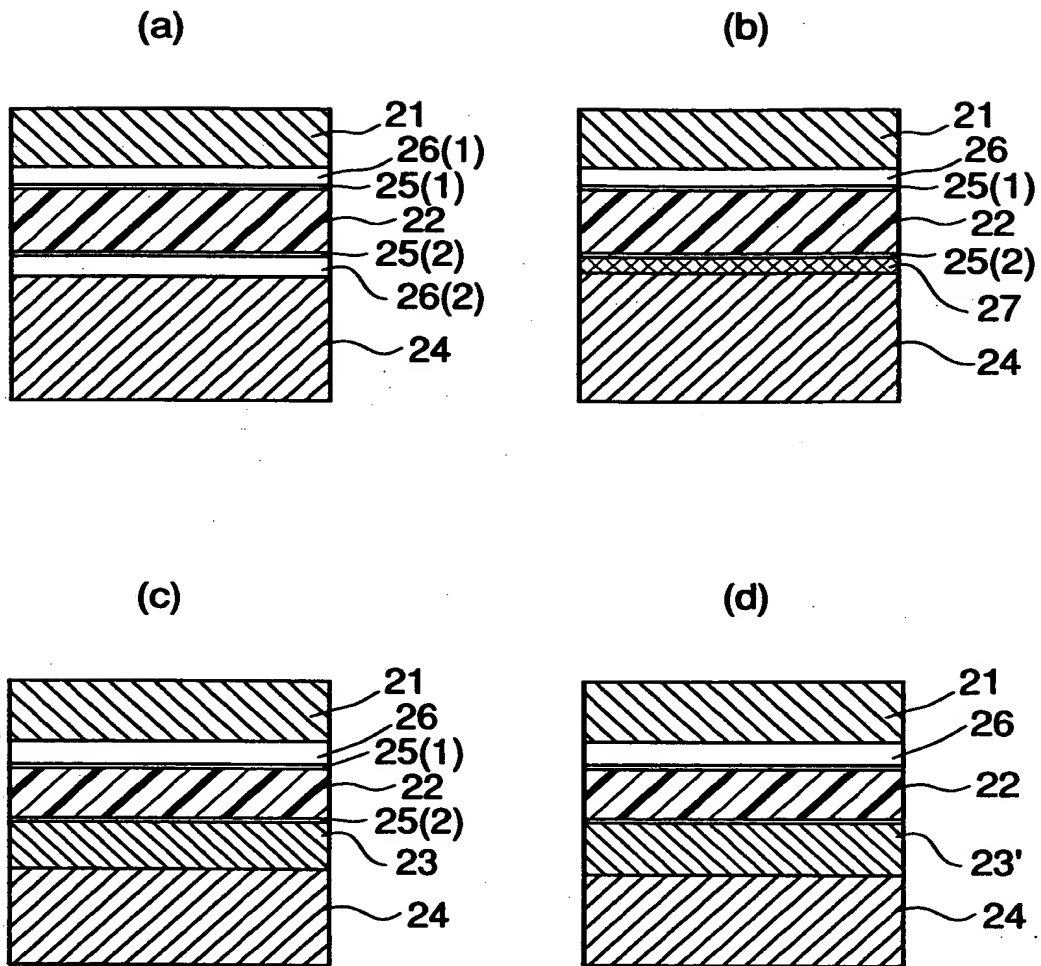
【図 4】



【図 5】

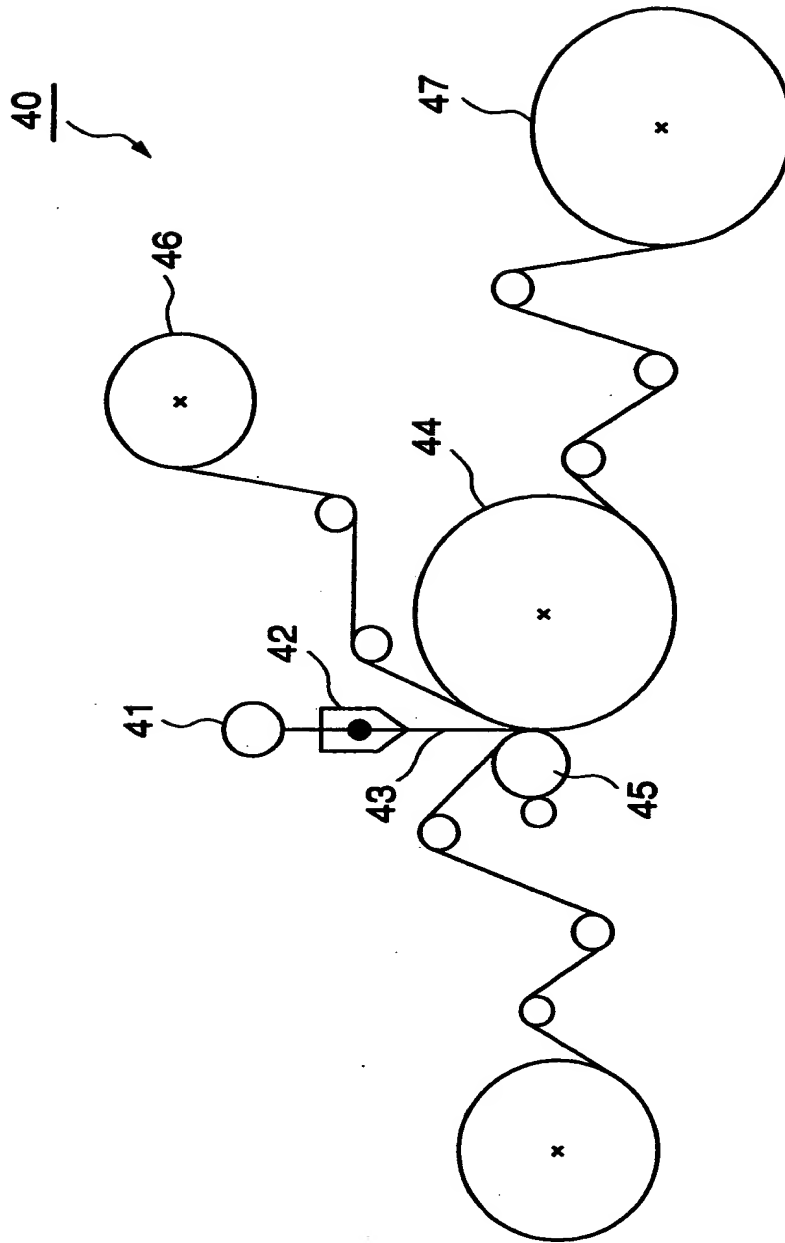


【図 6】

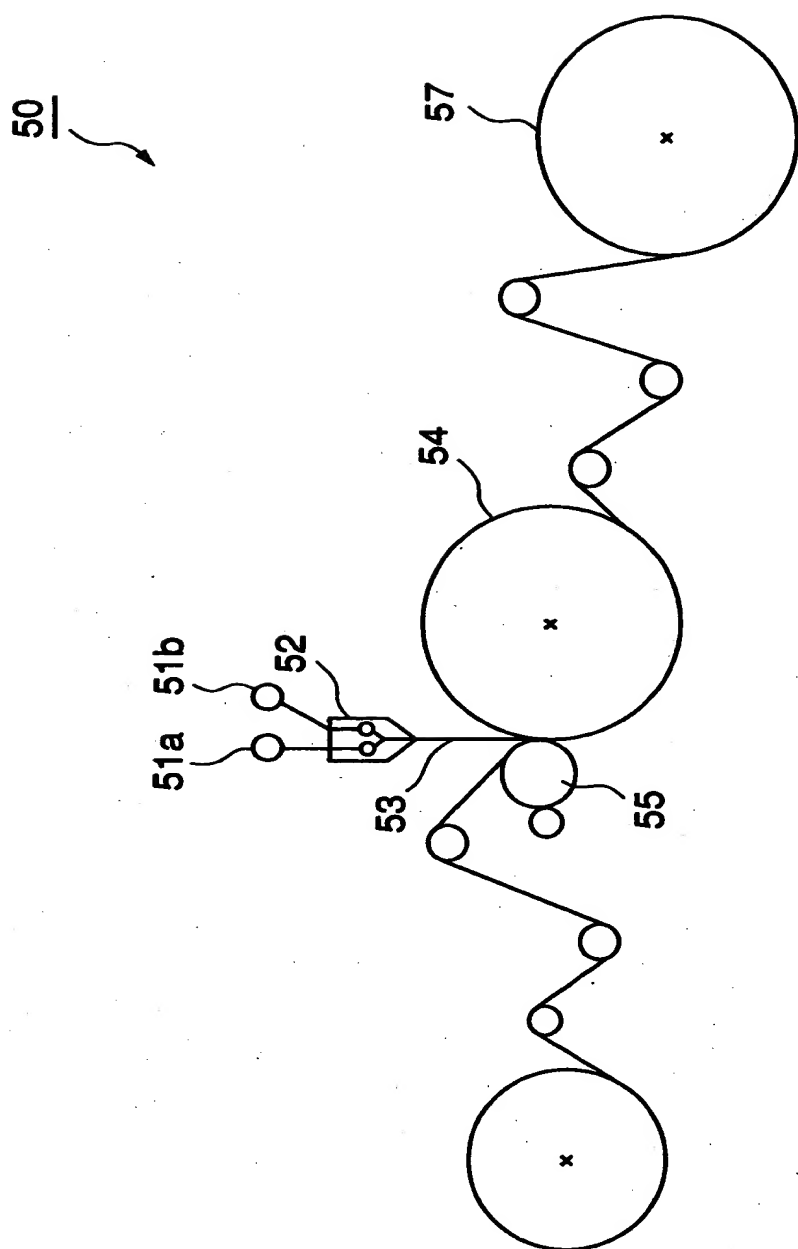




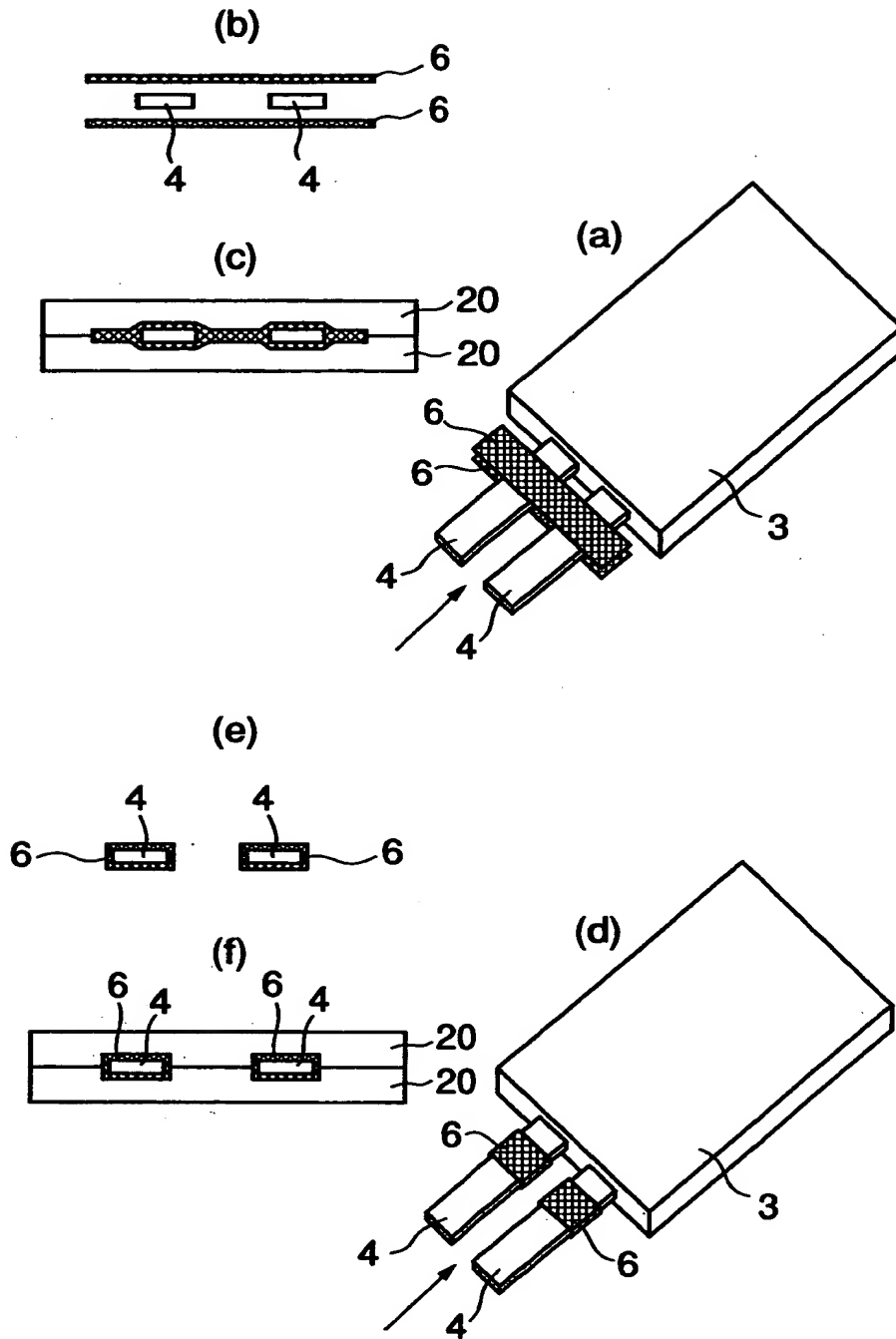
【図 7】



【図 8】

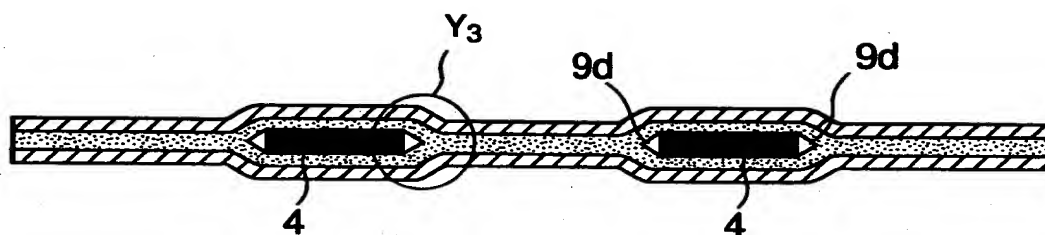


【図9】

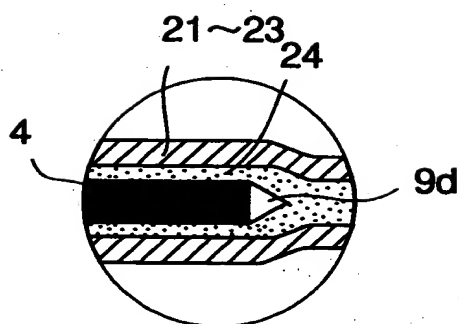


【図 1 0】

(a)



(b)



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 ポリマー電池包装におけるタブ部のヒートシールによる密封を確実にするシールヘッドおよびシール方法を提供する。

【解決手段】 柔軟な積層体からなる外装体にポリマー電池本体を収納し、外装体のタブを含む端縁部をヒートシールにより密封する際に用いるシールヘッドであって、少なくともシールヘッドの片面におけるシール面の前記ヒートシールの際にタブ部に当接する領域を凹部としたポリマー電池包装用シールヘッドである。

【選択図】 図 1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000002897]

1. 変更年月日 1990年 8月27日

[変更理由] 新規登録

住 所 東京都新宿区市谷加賀町一丁目1番1号

氏 名 大日本印刷株式会社